

A2

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平10-513600

(43) 公表日 平成10年(1998)12月22日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	F I		
H 0 1 M	8/24	H 0 1 M	8/24	E
	8/02		8/02	E
				Y
	8/10		8/10	
審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 19 頁)				

(21) 出願番号 特願平8-522547
 (86) (22) 出願日 平成8年(1996)1月23日
 (85) 翻訳文提出日 平成9年(1997)7月28日
 (86) 国際出願番号 PCT/DE96/00111
 (87) 国際公開番号 WO96/23323
 (87) 国際公開日 平成8年(1996)8月1日
 (31) 優先権主張番号 195 02 391.9
 (32) 優先日 1995年1月26日
 (33) 優先権主張国 ドイツ (DE)
 (81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, M C, NL, PT, SE), JP, US

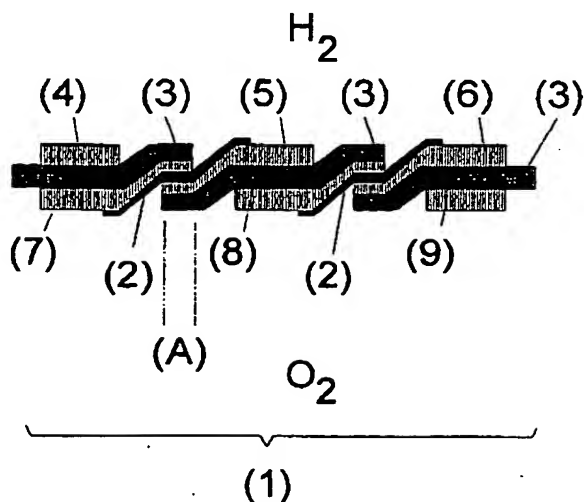
(71) 出願人 フラウンホファー・ゲゼルシャフト・ツ
 ャ・フェルダリュング・デア・アングバン
 テン・フォルシュング・エー・ファウ
 ドイツ連邦共和国・ディー80636・ミュン
 ヒェン・レオンロドシュトラッセ・54
 (72) 発明者 レドイエーフ, コンスタンティン
 ドイツ連邦共和国・ディー79189・バド
 クロンツィンゲン・クラインビュールヴェ
 ク・6
 (72) 発明者 ノルト, ローランド
 ドイツ連邦共和国・ディー79211・デンツ
 リンゲン・シュパーベンシュトラッセ・28
 (74) 代理人 弁理士 山川 政樹 (外5名)

(54) 【発明の名称】 隔膜電極ユニットを形成する単一セルのアセンブリおよびそれを使用する方法

(57) 【要約】

本発明は、2～10000個の単一セルが、1つの単一セルの電極領域(4、5、6)の階段状の重ね合わせによって次の電池の対向する電極領域(7、8、9)に直列に接続され、それにより一次元隔膜電極ユニット(1)を構成すること、および少なくとも重なり合っている電極領域間に、電子伝導性材料の分路導電構造が配置されることを特徴とする、固体ポリマー電解質とその両側に塗布された電極領域とから構成され、隔膜電極ユニットを形成する平坦な単一セルのアセンブリに関する。

Fig. 1



【特許請求の範囲】

1. 2～10000個の単一セルが、1つの単一セルの電極領域（4、5、6）の階段状の重ね合わせによって次の単一セルの対向する電極領域（7、8、9）に直列に接続され、それにより一次元隔膜電極ユニット（1）を構成すること、および少なくとも互いに重なり合っている電極領域間に、電子伝導性材料から製造された分路導電構造（2、11）が配置されることを特徴とする、それぞれ固体ポリマー電解質とその両側に塗布された電極領域とから構成され、隔膜電極ユニットを形成する平坦な単一セルのアセンブリ。
2. 分路導電構造（2、11）が、外部電極領域の上まで案内され、同時にそれに一部重なることを特徴とする請求項1に記載の単一セルのアセンブリ。
3. 分路導電構造（2、11）が、外部電極領域の上まで案内され、その電極領域をほとんど全部覆うことを特徴とする請求項1または2に記載の単一セルのアセンブリ。
4. 分配構造（10）が、外部電極領域上および分路導電構造の上に配置され、少なくとも一部燃料浸透性になるように設計されることを特徴とする請求項1ないし3のいずれか一項に記載の単一セルのアセンブリ。
5. 分配構造（10）が、外部電極領域と分路導電構造（2、11）の間に配置され、少なくとも一部燃料浸透性になるように設計されることを特徴とする請求項1ないし4のいずれか一項に記載の単一セルのアセンブリ。
6. 分路導電構造（2、11）の電子伝導性材料が、金属、合金、導電性炭素変態、導電性ポリマー、またはそれらの混合物から選択されることを特徴とする請求項1ないし5のいずれか一項に記載の単一セルのアセンブリ。
7. 分路導電構造（2、11）が厚さ0.1mm～5mmであることを特徴とする請求項1ないし6のいずれか一項に記載の単一セルのアセンブリ。
8. 分路導電構造（2、11）が、例えば、網、組織、多孔性構造、または粗い面を有する構造など、滑らかでない表面を有する構造であることを特徴とする請求項1ないし7のいずれか一項に記載の単一セルのアセンブリ。
9. 分配構造（10）が、例えば、黒鉛紙や金属網など、電子伝導構造であるこ

とを特徴とする請求項1ないし8のいずれか一項に記載の単一セルのアセンブリ。
。

10. 少なくとも2個、高々50個の一次元隔膜電極ユニットがアセンブルされ、後者がそれぞれ平行に配置され、直列に接続されることを特徴とする請求項1ないし9のいずれか一項に記載の単一セルのアセンブリ。

11. 少なくとも2個、最大50個の一次元隔膜電極ユニットがアセンブルされ、後者がそれぞれ平行に配置され、並列に接続されることを特徴とする請求項1ないし9のいずれか一項に記載の単一セルのアセンブリ。

12. 隔膜・ポリマー電極電池（PEM電池）内で請求項1ないし11のいずれか一項に記載のアセンブリを使用する方法。

【発明の詳細な説明】

隔膜電極ユニットを形成する単一セルの
アセンブリおよびそれを使用する方法

本発明は、単一セルが電極領域の階段状の重ね合わせによって直列に接続された隔膜電極ユニットを形成する単一セルのアセンブリ、およびポリマー電解質隔膜燃料電池内でそれを使用する方法に関する。

例えば固体ポリマー電解質（PEM）を有する電気化学的電池は、簡単に言えば、電気化学反応がその上で進行する2つの電極を有し、同時にその電極間にあり、電極間のイオンを移動させる役目を果たし、イオン導電性ポリマーから製造される電解質を含んでいる。

両方の電極上で電気化学反応（アノードでは酸化、カソードでは還元）が自発的に進行するとき、電気化学的電池は電圧を発生する。単一セルは、数ミリボルトから数ボルトまでの範囲内の比較的低い電圧しか発生しない。しかしながら、例えば、トラクションレンジ（traction range）内の燃料セルの用途など、多数の実際的な用途には、かなり高い電圧が必要になる。

今までのところ、複数のそのような電池が別々にアセンブルされ、重なり合っ
て配置され、単一セルの電圧が加算されるように互いに直列に電氣的に接続される（バイポーラ・スタックタイプ構造）のはこのためである。直列接続を達成するこの方法では、より高い電圧の実現が確実に可能になる。とは言え、この方法は多くの欠点をもたらす。例えば、1つの水素／酸素燃料電池スタックについて、バイポーラ・プレート、水素ガス分配リング、触媒で被覆されたイオン交換膜、酸素ガス分配リング、それらの構成要素を密封する密封リング、ならびに電流分配構造が一般に各単一セルごとに必要であるので、そのような直列接続の構造上の骨折りは甚大である。この場合、合計10個の構成要素が各単一セルごとにある。例えば、70Vのスタック出力電圧を実現しようとする、単一セル電圧が0.7Vの場合、結局100個の単一セルが必要になる。すなわち、1000個の構成要素をアセンブルしなければならず、その場合、400個の密封リングを

固定しなければならない。

直列接続の他の欠点は、燃料電池スタック内の1つの単一セルが故障しただけでも、スタック全体が故障することである。しかしながら、上記の例の冗長なタイプの構成、すなわち複数の70Vのスタックの並列接続では、構成の努力が絶対に容認できないものになる。したがって、PEM燃料電池の効率的な動作の決定的要因は、それに応じて隔膜電極ユニットの構造である。

したがって、以上のことから、本発明の目的は、主としてPEM燃料電池内で使用するのに適しており、かつ高い出力電圧ならびに簡単かつ低コストの構造を保持する隔膜電極ユニットを提供することである。

この目的は、請求項1の特徴項によって解決される。サブクレームには有利な実施形態が示されている。

したがって、本発明によれば、アセンブリが、電極領域が階段状に重なり合うように実施され、かつ分路導電構造が重ね合わせの領域内に組み込まれる、複数の単一セルのアセンブリが得られるように隔膜電極ユニットをアセンブルすることが提案される。

本発明による隔膜電極ユニットは、両側に電極材料を接着したイオン導電性隔膜領域を含んでいる。水素／酸素燃料電池の場合、各隔膜領域には、一方の側に水素電極を接着し、他方の側に酸素電極を接着する。したがって、すべての水素電極は隔膜の一方の側にあり、すべての酸素電極は隔膜の他方の側にある。接着した2つの電極とともに、各隔膜領域は、燃料電池ユニットを構成し、したがって出力電圧を発生する。次に、本発明による隔膜電極ユニットの特徴的な特徴は、隔膜内の各単一セルが直列接続されることである。本発明によれば、これは、1つの単一セルの電極領域と、次の単一セルの対向する電極領域との直列接続の階段状の重ね合わせを実現することによって達成される。したがって、各単一セルのすべての出力電圧が加算される。このようにして、隔膜の上側の第1の電極上、および隔膜の下側の最後の電極上で、すべての燃料電池ユニットの電圧の総和が得られる。隔膜電極ユニットに属する本発明による階段状設計の場合、個々の外部電極領域の非常に良好な分路導電性が達成されることが重要である。これは、すべての電池電流がこのコーティングの断面を流れなければならないためで

ある。

しかしながら、それらの構造形態によれば、電極は、例えば、電極を押し付け触媒粉末から製造した場合、最大数100オームまでの不十分な分路導電性を示す。それによってもたらされる高い電池電圧損失を回避するために、本発明による隔膜電極ユニットは、重なり合っている電極領域内に配置されたいわゆる分路導電構造を有する。したがって、電極コーティングの不十分な分路導電性によって発生し、隣接する対向する2つの電極の間に発生する抵抗が明らかに小さくなる。したがって、高い出力電圧および簡単かつ低コストの構造を保持するだけでなく、内部電池電圧損失がほとんどない隔膜電極ユニットが初めて得られる。

イオン導電性を保証するために、単一セルは、本明細書では、イオン導電性材料から製造する。このために、隔膜の形をした固体ポリマー電解質が使用される。陽イオンまたは陰イオンを移動させなければならないので、隔膜は、陽イオンまたは陰イオンに対して浸透性でなければならない。陽イオン導電性ポリマー用の水様環境では、イオン導電性は、本明細書では、一般に、ポリマーが固く結合したカルボン酸基およびスルホン酸基およびリン酸基を含んでいる場合に得られる。これらはすべて、いわば、一般に、化学結合によって結合される。陰イオン導電性ポリマーの場合、イオン導電性は、特に、ポリマーがアミノ基、第四級アンモニウム基、またはピリジニウム基を含んでいる場合に得られる。イオン導電性の特徴は、これまで述べた可能性の場合、発生したイオン、隔膜内に固く結合したイオン、または膨張した際に水中に発生したイオンによってもたらされる。

その種類の陽イオン導電性ポリマーの例は、硫酸化ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルケトンである。

隔膜の厚さは、本明細書では、0.1 μm から5 mmの範囲内、好ましくは、10 μm から200 μm の範囲内である。単一セル用の隔膜の表面は、本明細書では、スタックの所要の性能に応じて設計される。表面は、100 μm^2 から1000000 mm^2 の範囲内、好ましくは100 mm^2 から10000 mm^2 の範囲内である。

次に、単一セルの役目を果たすことができるように、上述の隔膜の両側を電極

材料で被覆する。電池の電気化学反応は電極に影響を及ぼすので、電極は、電気化学的に反応した材料から製造するか、または電気化学反応を引き起こす材料か

ら製造する。材料は、電子伝導性でなければならず、特に、金属、金属酸化物、混合酸化物、合金、炭素、電子伝導性ポリマー、またはそれらの混合物を含む。

材料は、親水性および疎水性の標定に役立つ添加剤を含んでいる。前記添加剤の助けを借りて、電極層に、例えば防水特性を持たせることができる。さらに、材料は、ある一定の多孔性の標定を可能にする添加剤を含むことができる。これは、気体と、触媒と、イオン導電性領域との間の三相接触が必要となる気体薬品を電極上で触媒反応させる場合に特に重要である。さらに、いわゆる結合剤を混合して、電極のイオン導電性領域への安定かつ有効な接続をより容易にすることができる。

分路導電構造は、非常に良好な電子伝導性を示す材料から製造しなければならない。一般に、金属、合金、導電性炭素、導電性ポリマー、または導電性物質と混合したポリマーがこの用途に使用される。本発明による隔膜電極ユニットの表面構造中によく組み込むことができる $10\text{ }\mu\text{m}$ から $500\text{ }\mu\text{m}$ の厚さの薄い構造を利用することが好ましい。さらに、分路導電構造は、電池の寿命中、使用済み燃料（例えば、 H_2/O_2 燃料電池中の水／酸素）に対して安定であり、かつ発生する電池電位によって、電気化学的に破壊されないものとする。良好な導電性の他に、分路導電構造がストリップ・隔膜内に永久的に結合されることが望ましい。これは、それらの品質に関して、滑らかな表面を示さず、かつ強打または溶解した際に、隔膜・ポリマーに固く結合するような構造を利用することが好ましいためである。そのような構造は、例えば、網、組織、多孔性構造、または粗い面を有する箔である。そのような粗い面は、例えば、化学プロセスまたはプラズマ・エッチング・プロセスによって達成される。

次に、分路導電構造は、外部電極領域の上まで案内されるように設計される。分路導電構造は、本明細書では、電極領域をほとんど前部または一部のみ覆う。

好ましい構造形態によれば、さらに、分路導電構造が外部電極領域を一部のみ覆っている場合、燃料浸透性の電子伝導性分配構造をさらに配置することを提案

する。それらの導電分配構造は、電極領域の上に直接配置されるか、または電極領域および分路導電構造の上に配置される。前記分配構造の役目は、大きな電気損失なしに分路導電構造を電極表面全体に接続し、同時に電極表面への燃料供給

を可能にすることである。したがって、分配構造も同様に電子伝導性材料から製造しなければならない。その例として、本明細書では金属網または焼結金属コンパクトについて述べる。

分路導電構造はまた、電極領域を完全に覆うことができる。しかしながら、この場合、分路導電構造は、活性電極領域の範囲内で、電子伝導性の他に、また燃料浸透性でなければならない。これは、さもなければ、電極への燃料の供給がまったくできなくなるためである。また、本発明のこの構造形態の場合、分配構造を使用することが可能であり、有利であるが、その場合、電極表面／分路導電構造／分配構造の配置または電極表面／分配構造／分路導電構造の配置内に再び配置される。

隔膜電極ユニットを形成する平坦な単一セルの上述のアセンブリは一次元配置をもたらす。

次に、本発明によれば、複数個の一次元隔膜電極ユニットをアセンブルして、「二次元」隔膜電極ユニットを形成することもできる。本明細書によれば、2つの構造形態が実現可能である。一方、少なくとも2個、高々50個の一次元隔膜電極ユニットがアセンブルされる。後者は、平行に配置されるか、並列に接続されるか、または直列に接続される。

それらの構造形態により、出力電圧の更なる増大および冗長な電流供給がそれぞれ可能になる。

本発明の他の特徴、詳細および利点は、添付の図面に基づく本発明の以下の説明から得られる。

第1図は、外部電極領域の上まで案内された分路導電構造を有する本発明による一構造形態の断面図である。

第2図は、第1図による一構造形態の平面図である。

第3図は、分路導電構造上に配置された分配構造を有する一構造形態の断面図

である。

第4図は、外部電極領域と分路導電構造との間に分配構造が配置された一構造形態の断面図である。

第5図は、分路導電構造が外部電極領域の上を完全に覆っている一構造形態の断面図である。

第1図の一構造形態によれば、隔膜電極ユニット1は、両側に電極材料を接着したイオン導電性隔膜領域3から構成される。水素／酸素／燃料電池の場合、各隔膜領域3は、したがって、一方の側に水素電極4、5、6が接着され、隔膜の対向する側に酸素電極7、8、9が接着される。したがって、水素電極4、5、6はすべて一方の隔膜側にあり、酸素電極7、8、9はすべて他方の隔膜側にある。各隔膜領域は、2つの接着した電極とともに、燃料電池ユニットを構成し、負荷なしで約1ボルトの出力電圧を発生する。隔膜電極ユニット1の本発明の本質は、その内部単一セル燃料電池ユニットが直列に接続されることにある。このために、1つの燃料電池ユニットの下部電極7、8は、一度に導電性電極材料によって電子伝導的かつ燃料浸透的な形で次の燃料電池ユニットの上部電極5、6に直列に接続される。このようにして、第1の電極4と下部隔膜側の最後の電極9とからすべての燃料電池ユニットの電圧の総和が得られる。次に、電極領域5、6および7、8の良好な分路導電性を達成するために、電子伝導性の良好な分路導電構造2を重なり合った電極領域間に組み込む。本発明によれば、この場合、分路導電構造2が重なり合った電極領域（記号Aで示される）のみを覆っている場合、不十分である。分路導電構造を下側から上側まで通す事が好ましい。分路導電構造は、隔膜電極ユニットの1つの電池ユニットの1つの電極領域から隔膜電極ユニットの次の電池ユニットの対向する電極まで通過する。このようにして、それぞれ電極領域5、6および7、8は、分路導電構造2によって、それらの分路導電性に対して決定的に強化される。分路導電構造の良好な電子伝導性が得られるように働くことが重要である。これは、それに応じて電子伝導性材料を利用することによって達成される。本発明による概念によれば、さらに、分路導電構造2を隔膜電極ユニット中に案内する際に、隔膜の一方の側から他方の側へ

の燃料が浸透できないことが重要である。

そのような隔膜電極ユニットは、電極材料で被覆されたポリマー固体電極部片から製造される。1つの分路導電構造は、一度に2つの固体電解質部片の間に配置され、この構造は、それぞれ第1の固体電解質部片の下側から第2の固体電解質部片の上側に向かって延びる。それぞれ固体電解質部片／分路導電構造／固体

電解質部片から構成されるこれらの配置は、実質上耐久的にかつ燃料が洩れないように互いに接続される。固体電解質部片同士の接続および固体電解質部片と分路導電構造との接続は、例えば適切な接着剤を使用した接着技法によって実施される。

次に、第2図に、上述の構造形態の平面図を示し、第1図による構造形態において、分路導電構造2が電極領域5、6を一部のみ覆っていることを再度明らかにする。

次に、第3図による構造形態では、分路導電構造2は、それぞれ個々の電極領域5、6および7、8上に直接配置される。分路導電構造2は、それとともに、良好な電極導電性が得られることおよび一方のストリップ・隔膜側から他方のストリップ・隔膜側への燃料の移動が防げることを条件として、不透明な材料から製造するか、または網から製造する。その他に、第3図による構造形態では、燃料浸透性の電子伝導性分配構造10が分路導電構造2を有する電極領域上に配置される。構造10の役目は、大きな損失なしに分路導電構造を電極領域全体に電氣的に接続し、同時に電極表面への燃料供給を可能にすることである。

次に、第4図に、他の構造形態、および燃料浸透性の電子伝導性分配構造10がそれぞれ電極領域4、5、6および7、8、9上に配置され、この場合にのみ分路導電構造2が構造10上に配置された別形態を示す。この配置は、電極表面が均一に機械的に加重され、また第3図の構造形態によれば、電池をアセンブルする際に、分路導電構造2の端部を隔膜中に押し込まれるように電極領域上に直接配置することができるので、有利である。また、第4図の構造形態によれば、分路導電構造2は、良好な電子伝導性が得られること、および一方の側から他方の側への燃料の移動が防げることを条件として、不透明な材料から製造するか、

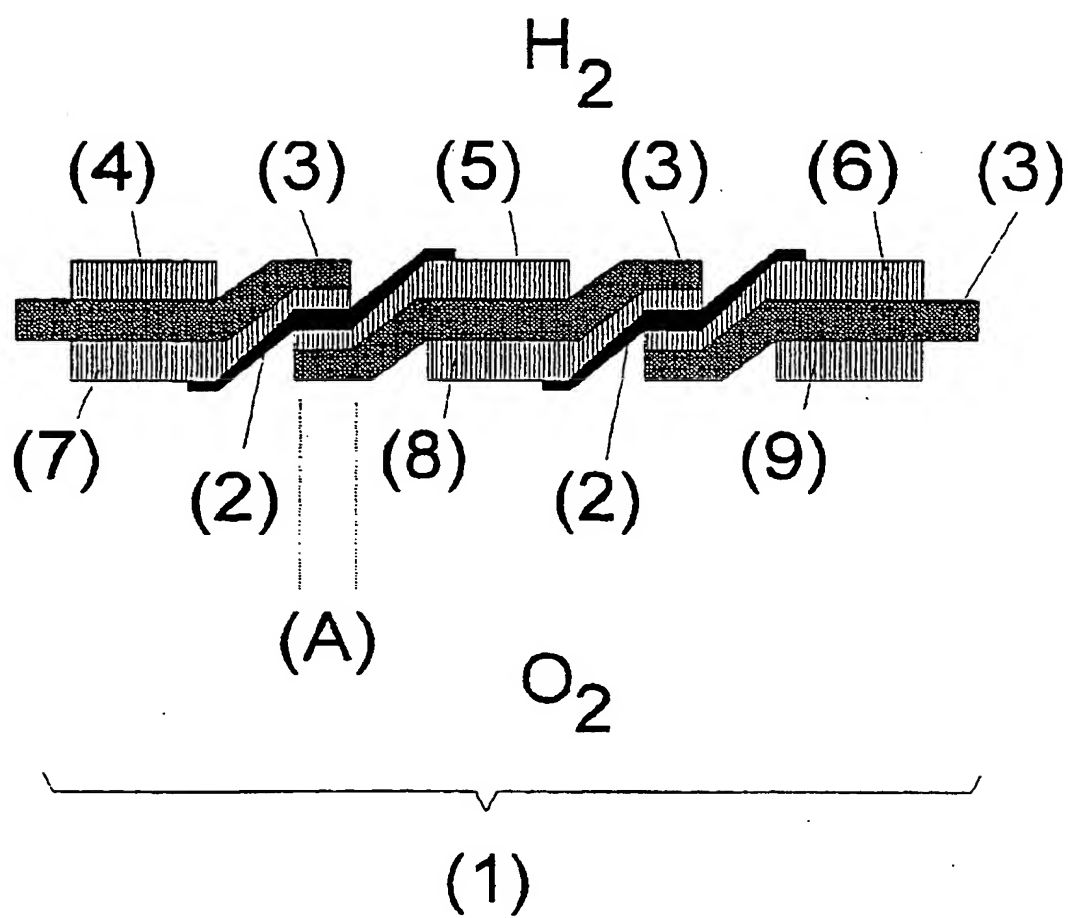
または網から製造する。

分路導電構造はまた、電極領域を完全に覆うことができる。そのような構造形態を第5図に示す。この場合、分路導電構造11は、活性電極領域の範囲内で、電子伝導性の他に、また燃料浸透性でなければならない。これは、さもないと、それぞれ電極5、6および7、8への燃料の供給がまったくできなくなるためである。また、この構造形態の場合、上述のように分配構造の追加の使用が可能で

あり、したがってその場合、電極領域／分路導電構造／分配構造の配置または電極領域／分配構造／分路導電構造の配置が実現可能である。

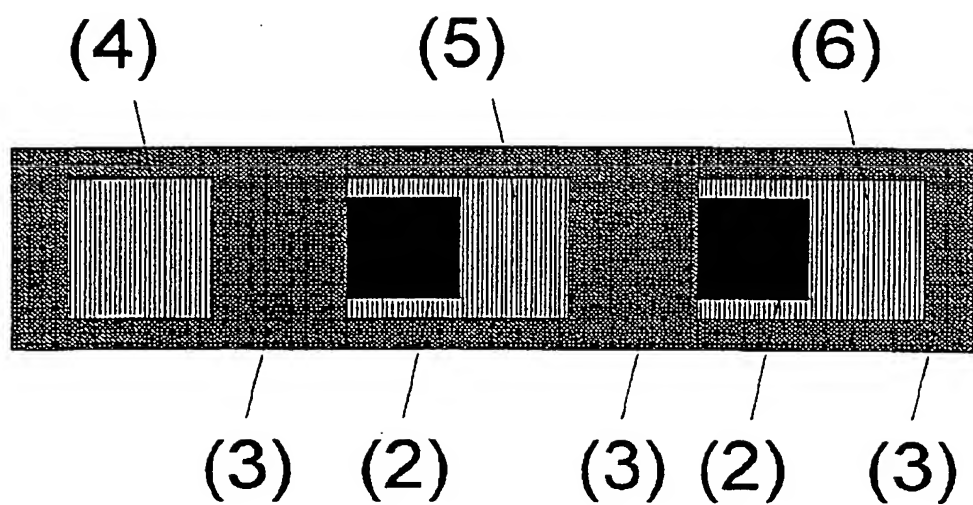
【図 1】

Fig. 1



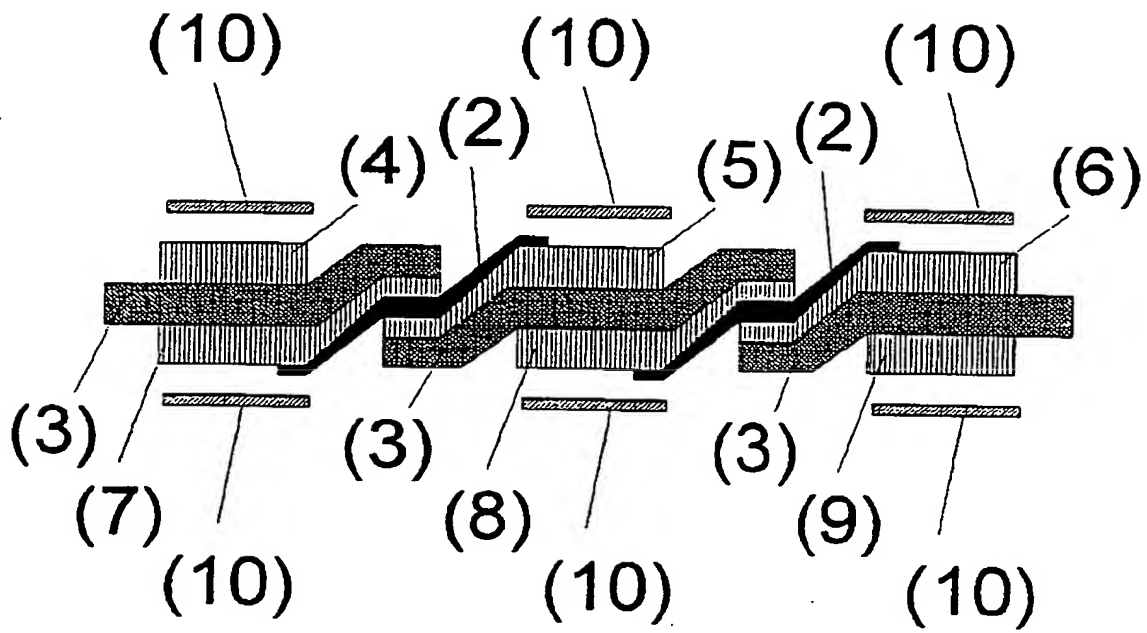
【図 2】

Fig. 2



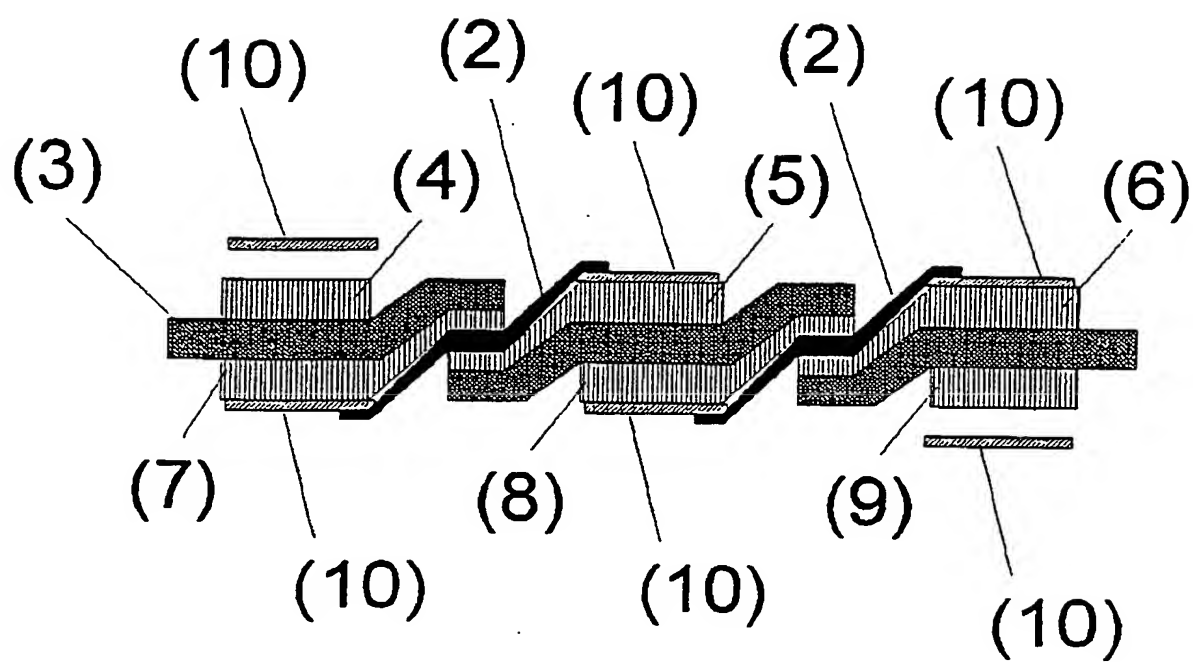
【図 3】

Fig. 3



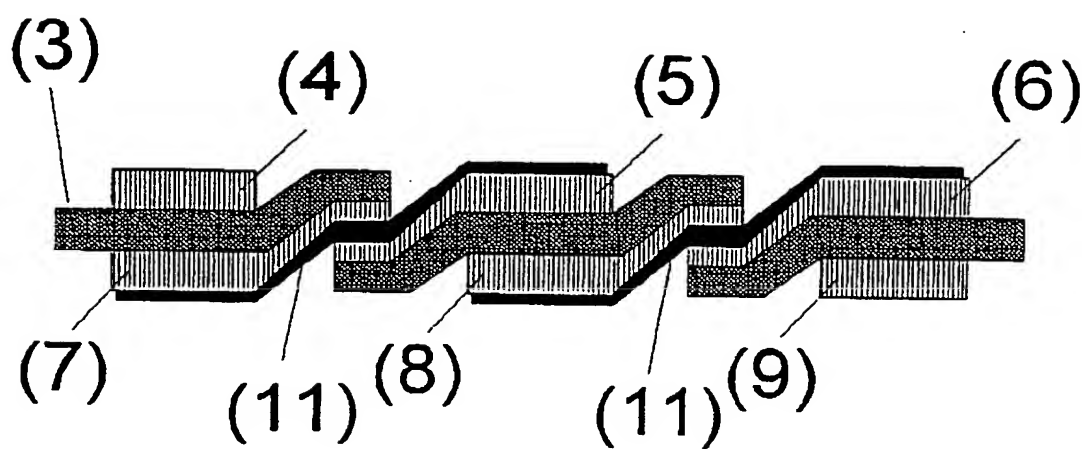
【図 4】

Fig. 4



【図 5】

Fig. 5



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/DE 96/00111

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
IPC 6	H01M8/24	H01M8/10 H01M8/02 H01M6/42 H01M6/46
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
IPC 6 H01M		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO, A, 95 04382 (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ; LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 9 February 1995 see page 3, line 5-27 see page 5, line 31 - page 8, line 20 see page 23, line 4-20; figures 3, 4 ---	1, 6, 8-12
A	WO, A, 94 25995 (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ; LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 10 November 1994 see page 3, line 10 - page 4, line 31 see page 7, line 20-31 see page 13, line 7-34 see figures 1-7 see claims 1-14 --- -/-	1-12
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents:		
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
4 April 1996		23. 04. 96
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5318 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016		Authorized officer Engl. H

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/DE 96/00111

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	FR,A,1 452 564 (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 8 December 1966 see the whole document ---	1-12
A	US,A,3 554 809 (CRAFT DONALD W) 12 January 1971 see column 2, line 60 - column 3, line 7 see column 3, line 34-65 see figures 1-6 ---	1-12
A	EP,A,0 198 483 (IVAC CORP) 22 October 1986 see page 1, line 3 - page 2, line 24 see page 5, line 11-34 see figure 2 -----	1-12

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 96/00111

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO-A-9504382	09-02-95	DE-A- 4329819	02-02-95
WO-A-9425995	10-11-94	DE-C- 4314745 EP-A- 0698300	08-12-94 28-02-96
FR-A-1452564	08-12-66	CH-A- 462262 GB-A- 1091303	
US-A-3554809	12-01-71	DE-A- 1814702 FR-A- 1595324	10-07-69 08-06-70
EP-A-0198483	22-10-86	US-A- 4648955 CA-A- 1270295 JP-A- 62002466 JP-A- 7169499	10-03-87 12-06-90 08-01-87 04-07-95

Form PCT/ISA/218 (patent family annex) (July 1992)